



TITLE:

# Growth of InGaN-Based Emitters on ScAlMgO<sub>4</sub> Substrates for Full Visible Spectral Range( Abstract\_要旨 )

AUTHOR(S):

Ozaki, Takuya

---

CITATION:

Ozaki, Takuya. Growth of InGaN-Based Emitters on ScAlMgO<sub>4</sub> Substrates for Full Visible Spectral Range. 京都大学, 2017, 博士(工学)

ISSUE DATE:

2017-03-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k20384>

RIGHT:

許諾条件により本文は2018-03-23に公開

京都大学	博 士 (工 学)	氏名	尾崎 拓也
論文題目	Growth of InGaN-Based Emitters on ScAlMgO <sub>4</sub> Substrates for Full Visible Spectral Range (可視全域をカバーする発光素子開発のための ScAlMgO <sub>4</sub> 基板上への InGaN 系発光層の成長に関する研究)		
(論文内容の要旨)			
<p>本論文は、可視全域をカバーする発光素子開発を目指して、ScAlMgO<sub>4</sub> 基板上への (In)GaN 系エピタキシャル層の成長を行ったものであり、同構造における青色及び緑色発光ダイオード (LED) の試作に成功している。また、ScAlMgO<sub>4</sub> 基板上への格子整合 In<sub>0.17</sub>Ga<sub>0.83</sub>N エピタキシャル膜の成長と物性、さらには赤色 LED 構造としての可能性について論じており、全 6 章からなっている。</p> <p>第 1 章は序論であり、本論文の背景と目的、そして本論文の構成について述べている。InGaN を用いた可視発光素子として、近紫外から緑色波長域にかけての LED やレーザダイオード (LD)、さらには白色 LED が実用化されている。そのインパクトは大きく、一般照明などにパラダイムシフトを引き起こしている。しかし、原理的には、GaN の禁制帯幅 (3.4eV) から InN のそれ (0.64 eV) に相当する波長域 (365 nm – 2 μm) をカバーできるはずであることを考えると、材料のポテンシャルの一部しか利用できていないとも言える。特に、緑色から赤色にかけては、ディスプレイ応用上重要な可視長波長域であり、ここでのデバイスの高効率化が期待されている。可視長波長域での発光素子を作製するためには、高い In 組成をもった InGaN 量子井戸構造が必要である。しかしながら、In 組成を増加させることは、(1)空間的な In 組成揺らぎの増大により不均一広がりが増大する、(2)下地の GaN 層との格子不整合が増大するため格子緩和が発生しやすくなる、(3)コヒーレント成長した場合でも、内包する歪が分極電界を誘起するため、電子と正孔の輻射再結合確率が低下する、といった問題点を指摘することができる。本研究では、項目 (2)、(3) を避けるためには、従来採用されてきた、GaN をホスト材料とし、そのホスト中に InGaN 量子井戸を形成する素子構造を見直すことが有効な手段であると考え、窒化物半導体用の新しい基板として、酸化物 ScAlMgO<sub>4</sub> の利用を提案している。また項目 (1) についても基礎光物性評価による検討を行っている。</p> <p>第 2 章では、有機金属気相エピタキシャル成長 (MOVPE) 法によって、ScAlMgO<sub>4</sub> 基板上に GaN の結晶成長を試みている。具体的には、低温バッファ層の成長温度と膜厚および低温バッファ層上への高温エピタキシャル層の成長温度を最適化し、分子レベルで平坦な表面を得ることに成功している。さらに、GaN/ ScAlMgO<sub>4</sub> の結晶性と残留歪を X 線回折 (XRD) 法により評価している。その結果、GaN/sapphire (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) と比較して、同等以下の転位密度を有する高品質な結晶性</p>			

京都大学	博 士 (工 学)	氏名	尾崎 拓也
<p>であること、残留圧縮応力が一桁以上低減できていることを示している．後者は、GaN と ScAlMgO<sub>4</sub> 基板との熱膨張係数の差が、GaN と sapphire 基板と比較して小さいことに起因していると考えられ、ScAlMgO<sub>4</sub> 基板の優位性を実証したものである．</p> <p>第 3 章では、ScAlMgO<sub>4</sub> 基板上への InGaN/GaN 系 LED の作製を試みている．まず、Si ドーピングによって GaN/ ScAlMgO<sub>4</sub> の n 形電気伝導度制御、Mg ドーピングによって GaN/ ScAlMgO<sub>4</sub> の p 形電気伝導度制御を実現している．ScAlMgO<sub>4</sub> 基板から GaN 膜中に拡散した Mg が、Si ドープした GaN の n 形電気特性におよぼす影響（キャリア補償効果）を定量的に評価している．さらに、GaN/ ScAlMgO<sub>4</sub> 上への InGaN 系 LED（青色及び緑色）の試作に成功し、従来の sapphire 基板上の LED より同等以上の発光効率を実証している．</p> <p>第 4 章では、ScAlMgO<sub>4</sub> 基板上への格子整合 InGaN の成長と物性評価を行い、格子整合 InGaN 上への In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/In<sub>y</sub>Ga<sub>1-y</sub>N QW 構造を試作している．すなわち、ScAlMgO<sub>4</sub> 基板上への InGaN エピタキシャル膜の MOVPE 成長において、格子整合した低温 InGaN バッファ層の導入により膜の均一性を向上させることで、ほぼ無歪の格子整合 In<sub>0.17</sub>Ga<sub>0.83</sub>N 単層膜の作製できていることを XRD によって評価している．また、この試料の光学評価を行い、蛍光顕微鏡観察によって均一な緑色発光を観測している．さらに、フォトルミネッセンス（PL）スペクトルの発光半値幅とストークスシフトの温度依存性を測定し、これらデータを励起子ホッピングモデルによって解析を行っている．具体的には、In 組成揺らぎに起因すると考えられるポテンシャル揺らぎを解析し、試料中には空間階層の異なるポテンシャル揺らぎ（μm スケールでの揺らぎと nm スケールでの揺らぎ）が存在し、それぞれのエネルギー値を定量的に評価することに成功している．この物性評価は、励起子局在と発光・非発光過程を精査し、高い発光量子効率を目指すための基礎物性として重要な意義を持つ．つぎに、InGaN エピタキシャル層の成長方向の In 組成揺らぎを評価し、組成引き込み効果、すなわち成長条件を少し変動させても格子整合の In 組成にピニングされる現象を発見している．</p> <p>第 5 章では、得られた MOVPE 成長条件を基にして、格子整合 In<sub>0.17</sub>Ga<sub>0.83</sub>N 単層膜上に In<sub>0.17</sub>Ga<sub>0.83</sub>N/ In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N/ In<sub>0.17</sub>Ga<sub>0.83</sub>N (x &gt; 0.17) 系 QW を作製することに成功し、上記構造から赤色フォトルミネッセンスを観測することに成功している．この成果は、ScAlMgO<sub>4</sub> 基板を用いることで青、緑、赤色の可視全域をカバーする InGaN 系 LED が実現できる可能性を示すものである．</p> <p>第 6 章では、本研究の総括と、今後の課題についてまとめている．すなわち、InGaN 系半導体のポテンシャル揺らぎの起源の解明と制御が、可視全域をカバーする LED の発光色(波長)制御や高効率化のために重要であることを述べている．さらに、ScAlMgO<sub>4</sub> 基板の劈開性に着目し、基板劈開によるエピタキシャル層の転写技術によって、フレキシブル発光デバイスとして展開可能であることを提案している．</p>			

## (論文審査の結果の要旨)

本論文は  $\text{ScAlMgO}_4$  基板上への  $(\text{In})\text{GaN}$  系エピタキシャル層の成長を行ったものであり、同構造における青色及び緑色発光ダイオード (LED) の試作に成功している。また、 $\text{ScAlMgO}_4$  基板上への格子整合  $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N}$  エピタキシャル膜の成長と物性、さらには赤色 LED 構造としての可能性について論じている。これらの成果は、可視全域をカバーする発光素子開発に繋がるものであり、以下の内容に纏めることができる。

1.  $\text{ScAlMgO}_4$  基板上への  $(\text{In})\text{GaN}$  系半導体の成長検討と  $\text{GaN}$  の成長
  - ・  $\text{ScAlMgO}_4$  基板の  $a$  格子定数に着目し  $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N}$  との格子整合を発見
  - ・  $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N}/\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N}$  ( $x > 0.17$ ) 系 QW の物性予測
  - ・  $\text{ScAlMgO}_4$  基板上への  $\text{GaN}$  の有機金属気相エピタキシャル成長の成功
2.  $\text{ScAlMgO}_4$  基板上への  $\text{InGaN}/\text{GaN}$  系 LED の作製
  - ・ ドーピングによる  $\text{GaN}/\text{ScAlMgO}_4$  の電気伝導度制御
  - ・ 基板から拡散した  $\text{Mg}$  が  $\text{GaN}$  の電気伝導度に及ぼす影響を評価
  - ・  $\text{ScAlMgO}_4$  基板上への高品質  $\text{InGaN}/\text{GaN}$  系青色・緑色 LED の試作に成功
3.  $\text{ScAlMgO}_4$  基板上への格子整合  $\text{InGaN}$  の成長と物性評価
  - ・ 格子整合した低温  $\text{InGaN}$  バッファ層の導入による膜の均一性向上
  - ・ 組成制御によりほぼ無歪の格子整合  $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N}$  単層膜の作製に成功
  - ・ 格子整合  $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N}$  単層膜からの高効率緑色発光の観察
  - ・ 上記構造における面内ポテンシャル揺らぎを励起子ホッピングモデルにより定量評価
  - ・  $\text{InGaN}$  成長方向の  $\text{In}$  組成揺らぎを評価し組成引き込み効果を発見
4.  $\text{ScAlMgO}_4$  基板上への  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{In}_y\text{Ga}_{1-y}\text{N}$  QW 構造の試作
  - ・ 格子整合  $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N}$  単層膜上に  $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N}/\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N}$  ( $x > 0.17$ ) 系 QW を作製することに成功
  - ・ 上記の構造から赤色フォトルミネッセンスを観測

本論文は、新しい基板材料として  $\text{ScAlMgO}_4$  に着目し、 $(\text{In})\text{GaN}$  系半導体の MOVPE 成長を実現している。また、同基板上への青色及び緑色 LED の試作に成功するとともに、同基板上への高品質な格子整合  $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N}$  エピタキシャル膜の成長と物性解明、さらには、同構造をベースとした  $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N}/\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}/\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{N}$  QW の赤色 LED としての可能性について論じており、可視域の発光素子の応用上において寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 29 年 2 月 21 日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。